

文章编号:1673-0062(2013)04-0019-04

一种同时测量 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 的单闪烁室两段法

周青芝,肖德涛*,赵桂芝,肖拥军,单 健

(南华大学核科学技术学院,湖南 衡阳 421001)

摘 要:本文介绍了一种同时测量混合 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 空气的单闪烁室方法,该方法利用一个闪烁室测量采样结束后两个不同时间段的计数,再联立一个二元方程组来求解 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 浓度,因此也叫单闪烁室两段法,该方法无需任何延时即可快速准确测定混合环境下 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 浓度.

关键词: ^{222}Rn ; ^{220}Rn ; 闪烁室; 两段法

中图分类号:TL75⁺1 文献标识码:B

Simultaneous Measurement of Radon and Thoron Using a Scintillation Cell

ZHOU Qing-zhi, XIAO De-tao*, ZHAO Gui-zhi, XIAO Yong-jun, SHAN Jian

(School of Nuclear Science and Technology, University of South China,
Hengyang, Hunan 421001, China)

Abstract: A method has been developed for the simultaneous measurement of radon (^{222}Rn) and thoron (^{220}Rn) in a mixed environment using a scintillation cell in this paper. The method uses counts from two arbitrary counting intervals from zero time with respect to sampling, establishes two equations with two unknown variables to solve concentrations of radon and thoron, hence, called two-count method (TCM). The method can be used to estimate the radon and thoron concentrations in a mixed environment accurately and quickly, as there is no need to delay the counting to achieve complete decay of thoron.

key words: radon; thoron; scintillation cell; two-count method

0 引 言

^{222}Rn 、 ^{220}Rn 是天然存在的放射性惰性气体,

对其准确测量是环境监测、辐射防护、找矿、地震预报、地质调查、工程质量监测等相关领域十分关注的问题^[1-4].

收稿日期:2013-06-25

基金项目:国家青年基金资助项目(11005060);教育部博士点基金资助项目(20114324110003)

作者简介:周青芝(1981-),男,湖南邵东人,南华大学核科学技术学院讲师,博士研究生.主要研究方向:气载放射性监测与评价方法研究.* 通讯作者.

目前,测量 ^{222}Rn 的方法有多种,但测量 ^{220}Rn 的方法较少,尤其是 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 同时存在时.基于不同测量原理,测量 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 的方法可分为静电收集法、闪烁室法、双滤膜法、活性炭 γ 能谱法等,其中闪烁室法是最简单和成熟的方法之一^[5].南华大学氡实验室为实现对 ^{220}Rn 室中 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 的准确计量先后研究了双闪烁室流气延时法和单闪烁室静态延时法,这两种方法均利用 ^{220}Rn 的半衰期短而 ^{222}Rn 半衰期较长的特点实现对 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 的甄别.其中双闪烁室流气延时法利用一个闪烁室测量 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 混合信息,而另一个闪烁室通过较长管道延时来让 ^{220}Rn 衰变掉,从而实现 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 的测量;单闪烁室静态法通过对同一样品的两个不同时间段测量,前一段测量 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 混合信息,让同一样品空气密闭于闪烁室内并静置一段时间,待 ^{220}Rn 基本衰变掉后再进行第二段测量,从而实现 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 的甄别.这两种方法均采用实验方法确定转换系数(探测信号与 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 活度浓度的转换系数),双闪烁室流气延时法的管线较复杂,同时需两套探测系统且对气体流率稳定性有较高的要求,而单闪烁室静态延时法第二段计数还未能消除 ^{220}Rn 子体的影响.

1 闪烁法测量氡

闪烁室是内表面涂有硫化锌(银)闪烁体且有一面透光窗的密闭容器,其已被广泛应用于 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 测量.闪烁室的结构示意图如图1所示.

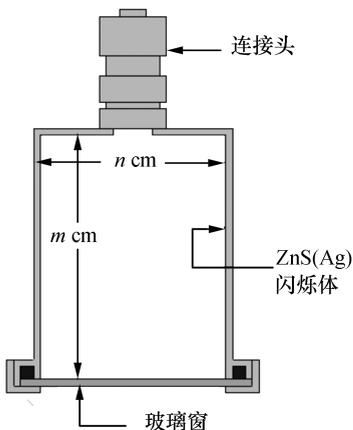


图1 闪烁室示意图

Fig. 1 Schematic diagram of scintillation cell

含氡空气经滤膜过滤后,将其密闭于闪烁室内,期间氡及其子体衰变放出 α 粒子, α 粒子与室壁上的硫化锌(银)闪烁体相互作用而产生光子,产生的光子被光电倍增管探测系统记录,由于探测到的光子数与闪烁室内氡浓度、探测效率及测量时间等因素相关,因此可通过探测系统效率因子换算计算得到采样环境空气中氡浓度值^[6-7].

2 单闪烁室两段法

2.1 计算公式理论推导

如图2为单闪烁室两段法测量示意图.

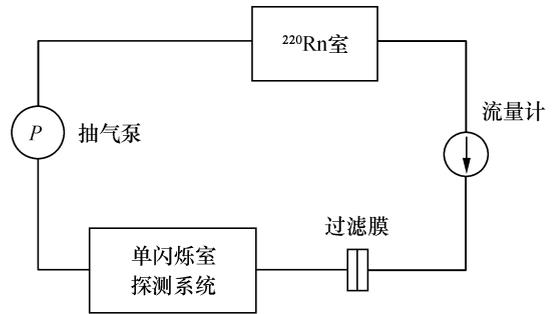


图2 单闪烁室两段法测量示意图

Fig. 2 Schematic diagram of measurement by two-count method using a scintillation cell

开启抽气泵使含 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 空气以 $v(\text{L}/\text{min})$ 流速经高效子体过滤器后进入闪烁室中,当闪烁室内气体浓度与 ^{220}Rn 室中气体浓度平衡时关闭抽气泵,完成采样;采样结束后,立即开启单闪烁室探测系统,记录 $0-t_1$ 和 $0-t_2$ 两个时间段的信号计数 N_1 和 N_2 . N_1 、 N_2 经探测效率修正可得到 α 总活度,其大小取决于探测效率、 ^{222}Rn 及其两个 α 放射性子体(^{218}Po 和 ^{214}Po)和 ^{220}Rn 及其三个 α 放射性子体(^{216}Po 、 ^{212}Bi 和 ^{212}Po)的活度.考虑到上述因素,联立式(1)、式(2)两个方程,即可求解采样空气 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 活度浓度^[5].

$$N_1 = \eta(\alpha_{Rn1}x + \alpha_{Tn1}y) \quad (1)$$

$$N_2 = \eta(\alpha_{Rn2}x + \alpha_{Tn2}y) \quad (2)$$

其中 x 、 y 分别是闪烁室内 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 的活度(Bq), η 为探测效率, α_{Rn1} 、 α_{Tn1} 分别是单位活度的 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 在 $0-t_1$ 时间段内的 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 及其 α 衰变子体的总活度, α_{Rn2} 、 α_{Tn2} 分别是单位活度的 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 在 $0-t_2$ 时间段内的 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 及其 α 衰变子体的总活度.

$$\alpha_{Rn1} = \int_0^{t_1} A_{R1}(t) dt + \int_0^{t_1} A_{R2}(t) dt + \int_0^{t_1} A_{R3}(t) dt \quad (3)$$

²²²Rn 及其 α 衰变子体在 0 - t₁ 时间段内的总活度 α_{Rn1} 如式(3)所示,其中 A_{R1}、A_{R2} 和 A_{R5} 分别是单位活度²²²Rn 情况下²²²Rn、²¹⁸Po 和²¹⁴Po 的活度。同样,α_{Rn2} 可以表示如式(4)。

$$\alpha_{Rn2} = \int_0^{t_2} A_{R1}(t) dt + \int_0^{t_2} A_{R2}(t) dt + \int_0^{t_2} A_{R5}(t) dt \quad (4)$$

$$A_{R1}(t) = e^{-\lambda_1 t} \quad (5)$$

$$A_{R2}(t) = \lambda_2 \left(\frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_2 - \lambda_1} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_1 - \lambda_2} \right) \quad (6)$$

$$A_{R5}(t) = \lambda_2 \lambda_3 \lambda_4 \lambda_5 \left(\frac{e^{-\lambda_1 t}}{\alpha_1} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\alpha_2} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{\alpha_3} + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{\alpha_4} + \frac{e^{-\lambda_5 t}}{\alpha_5} \right) \quad (7)$$

其中,

$$\alpha_1 = (\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_4 - \lambda_1)(\lambda_5 - \lambda_1),$$

$$\alpha_2 = (\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_5 - \lambda_2),$$

$$\alpha_3 = (\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_5 - \lambda_3),$$

$$\alpha_4 = (\lambda_1 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_3 - \lambda_4)(\lambda_5 - \lambda_4),$$

$$\alpha_5 = (\lambda_1 - \lambda_5)(\lambda_2 - \lambda_5)(\lambda_3 - \lambda_5)(\lambda_4 - \lambda_5).$$

在上述表达式中,λ 代表²²²Rn 及其衰变子体的衰变常数,其中 λ₁ 是²²²Rn 的衰变常数。

α_{TN1}、α_{TN2} 分别是单位活度²²⁰Rn 情况下²²⁰Rn 及其 α 衰变子体在 0 - t₁、0 - t₂ 时间段内的总活度。

$$\alpha_{TN1} = \int_0^{t_1} A_{T1}(t) dt + \int_0^{t_1} A_{T2}(t) dt + [0.36 \int_0^{t_1} A_{T4}(t) dt + 0.64 \int_0^{t_1} A_{T5\alpha}(t) dt] \quad (8)$$

$$\alpha_{TN2} = \int_0^{t_2} A_{T1}(t) dt + \int_0^{t_2} A_{T2}(t) dt + [0.36 \int_0^{t_2} A_{T4}(t) dt + 0.64 \int_0^{t_2} A_{T5\alpha}(t) dt] \quad (9)$$

其中 A_{T1}、A_{T2}、A_{T4} 和 A_{T5α} 分别是单位活度²²⁰Rn 情况下²²⁰Rn、²¹⁶Po、²¹²Bi 和²¹²Po 的活度。

$$A_{T1}(t) = e^{-\lambda_1 t} \quad (10)$$

$$A_{T2}(t) = \lambda_2 \left(\frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_2 - \lambda_1} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_1 - \lambda_2} \right) \quad (11)$$

$$A_{T4}(t) = \lambda_2 \lambda_3 \lambda_4 \left(\frac{e^{-\lambda_1 t}}{\beta_1} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\beta_2} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{\beta_3} + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{\beta_4} \right) \quad (12)$$

$$A_{T5\alpha}(t) = \lambda_2 \lambda_3 \lambda_4 \lambda_5 \left(\frac{e^{-\lambda_1 t}}{\beta_1} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\beta_2} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{\beta_3} + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{\beta_4} + \frac{e^{-\lambda_5 t}}{\beta_5} \right) \quad (13)$$

其中,

$$\beta_1 = (\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_4 - \lambda_1),$$

$$\beta_2 = (\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2),$$

$$\beta_3 = (\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3),$$

$$\beta_4 = (\lambda_1 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_3 - \lambda_4),$$

$$\alpha_{5\alpha} = (\lambda_1 - \lambda_{5\alpha})(\lambda_2 - \lambda_{5\alpha})(\lambda_3 - \lambda_{5\alpha})(\lambda_4 - \lambda_{5\alpha}).$$

在上述表达式中,λ 代表²²⁰Rn 及其衰变子体的衰变常数,其中 λ₁ 是²²⁰Rn 的衰变常数,而 λ_{5α} 是²¹²Po 的衰变常数。表 1 给出了²²²Rn、²²⁰Rn 衰变链的信息。

表 1 ²²²Rn、²²⁰Rn 衰变链

Table 1 Decay series of ²²²Rn, ²²⁰Rn

核素	符号	衰变方式	半衰期	衰变产物
²²² Rn				
²²² Rn	A _{R1}	α	3.82 d	²¹⁸ Po
²¹⁸ Po	A _{R2}	α	3.05 min	²¹⁴ Pb
²¹⁴ Pb	A _{R3}	β	26.8 min	²¹⁴ Bi
²¹⁴ Bi	A _{R4}	β	19.8 min	²¹⁴ Po
²¹⁴ Po	A _{R5}	α	164 μs	²¹⁰ Po
²²⁰ Rn				
²²⁰ Rn	A _{T1}	α	55.6 s	²¹⁶ Po
²¹⁶ Po	A _{T2}	α	0.15 s	²¹² Pb
²¹² Pb	A _{T3}	β	10.64 h	²¹² Bi
²¹² Bi	A _{T4}	β(64%)	60.55 min	²¹² Po
		α(36%)	60.6 min	²⁰⁸ Tl
²¹² Po	A _{T5}	α	164 μs	²⁰⁸ Pb

解式(1)、式(2)得:

$$x = \frac{1}{\eta} \cdot \frac{N_1 \alpha_{Tn2} - N_2 \alpha_{Tn1}}{\alpha_{Rn1} \alpha_{Tn2} - \alpha_{Tn1} \alpha_{Rn2}} \quad (14)$$

$$y = \frac{1}{\eta} \cdot \frac{N_2 \alpha_{Rn1} - N_1 \alpha_{Rn2}}{\alpha_{Rn1} \alpha_{Tn2} - \alpha_{Tn1} \alpha_{Rn2}} \quad (15)$$

采样气体从²²⁰Rn 室经管线流至闪烁室内,²²²Rn、²²⁰Rn 将会衰变掉一部分,因此应对衰变进行修正,闪烁室内²²²Rn、²²⁰Rn 活度分别表示如式(16)和式(17)。

$$x = C_1 e^{-\lambda_R T} \cdot V \quad (16)$$

$$y = C_2 e^{-\lambda_T T} \cdot V \quad (17)$$

其中 C₁、C₂ 分别是测量环境中²²²Rn、²²⁰Rn 活度浓度(Bq/m³),λ_R、λ_T 分别是²²²Rn、²²⁰Rn 的衰

变常数, T 是空气从 ^{220}Rn 室流至闪烁室所需的时间, V 是闪烁室的有效体积 (mL).

将式(14)、式(15)代入式(16)和式(17)可得 C_1 、 C_2 .

$$C_1 = \frac{e^{\lambda_R T}}{\eta V} \cdot \frac{N_1 \alpha_{Tn2} - N_2 \alpha_{Tn1}}{\alpha_{Rn1} \alpha_{Tn2} - \alpha_{Tn1} \alpha_{Rn2}} \quad (18)$$

$$C_2 = \frac{e^{\lambda_T T}}{\eta V} \cdot \frac{N_2 \alpha_{Rn1} - N_1 \alpha_{Rn2}}{\alpha_{Rn1} \alpha_{Tn2} - \alpha_{Tn1} \alpha_{Rn2}} \quad (19)$$

2.2 测量程序

图3是 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 在单位活度情况下 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 及其子体的 α 总活度随时间变化的曲线.

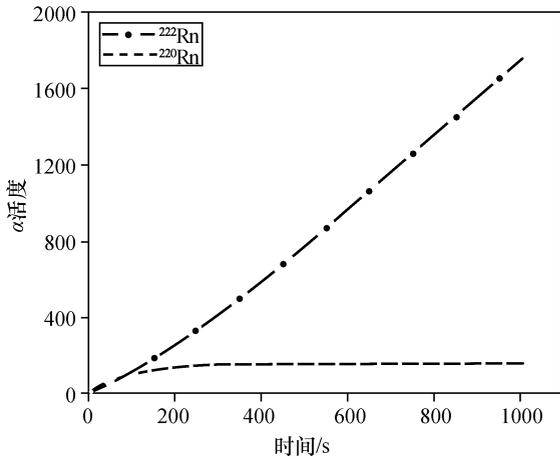


图3 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 及其子体理论上的 α 总活度 (^{222}Rn 、 ^{220}Rn 的活度分别为 1 Bq)

Fig.3 Integrated disintegrations (theoretical) of ^{222}Rn , ^{220}Rn and their progeny for unit activity of parents

在 1 000 s 时间范围内, ^{222}Rn 及其子体的 α 总活度随着时间持续上升, 而 ^{220}Rn 及其子体的 α 总活度在 200 s 后达到平衡. 为实现两段法对 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 的快速测量, 应尽可能缩短采样管道, 缩短采样时间, 从而降低 ^{220}Rn 的衰减, 设定总测量时间为 10 min, 为获得尽可能多有关 ^{220}Rn 的信息, 采样结束后应立即开启测量, 此外为更好的甄别 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn , 两个时间段应有较大的间隔. 因此本文推荐测量程序为: 在测量结束后立即开启测量, 分别在 0-200 s 和 0-600 s 两个时间段进行测量, ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 浓度计算公式中的参数可由计算机编程得到, 公式(20)和(21)如下:

$$C_1 = \frac{e^{\lambda_R T}}{\eta V} \cdot (1596N_2 - 1465N_1) \times 10^{-6} \quad (20)$$

$$C_2 = \frac{e^{\lambda_T T}}{\eta V} \cdot (2578N_1 - 9585N_2) \times 10^{-6} \quad (21)$$

式中, η 为仪器的探测效率, T 为气体流经管道的的时间, 由采样管道长度除以流速即得. 利用大流量抽气泵进行采样, 采样结束后, 立即启动测量系统进行计数, 分别测得 200 s 和 600 s 的 α 计数值 N_1 、 N_2 , 代入式(20)、式(21)即可计算得到 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 浓度.

3 结论

闪烁室法是氡测量的经典方法之一. 本文通过分析闪烁室内 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn α 总活度与时间等的数值关系, 联立关于两个不同时间段 α 总计数的两个二元方程, 并推导出 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 浓度的计算公式. 在此基础上, 本文还对闪烁室内 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 及其子体 α 总活度的变化规律进行了分析, 给出了两段法的参考测量程序. 相比其他方法, 单闪烁是两段法更简单, 能更快速地实现混合环境下 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 浓度的准确定值.

参考文献:

- [1] 朱立, 刘海生, 肖桂义, 等. 云南省个旧地区氡地质填图测量方法比较分析[J]. 岩矿测试, 2001, 20(1): 1-6.
- [2] 杜建国, 宇文欣, 李圣强, 等. 八宝山断层逸出氡地球化学特征及其与地震对应关系[J]. 地震, 1998, 18(2): 155-162.
- [3] 杨孝桐, 陈文瑛, 翁德通, 等. 福建地区空气中氡及其子体浓度与剂量评价[J]. 中华放射医学与防护杂志, 1990, 10(6): 404-406
- [4] 白光, 滕建华. 北京市居民建筑物外停留时间和方式的调查[J]. 辐射防护, 1984, 4(1): 33-35
- [5] 张智慧. 空气中氡及其子体的测量方法[M]. 北京: 原子能出版社, 1994.
- [6] Abbady A, Abbady A G E, Michel R. Indoor radon measurement with the Lucas cell technique[J]. Appl. Radiat. Isot., 2004, 61(6): 1469-1475.
- [7] Sakamoto S, Takakura H. Efficiency of a large size scintillation cell[J]. J. Radioanal. Nucl. Chem., 1998, 237(1/2): 257-260.